(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2001-335776 (P2001-335776A)

(43)公開日 平成13年12月4日(2001.12.4)

弁理士 小栗 昌平 (外4名)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	FΙ	テーマコード(参考)
C 0 9 K 11/06	602	C 0 9 K 11/06	602 3K007
	630		630 4C072
	650		650 4H049
	655		655 4J100
C 0 7 D 519/00		C 0 7 D 519/00	
		審査請求 未請求 請求項の数16 〇Ⅰ	. (全 52 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2000-218967(P2000-218967) (71)出願人 000005201 富士写真フイルム株式会社 (22)出願日 平成12年7月19日(2000.7.19) 神奈川県南足柄市中沼210番地 (72) 発明者 岡田 久 (31)優先権主張番号 特願平11-207957 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真 (32)優先日 平成11年7月22日(1999.7.22) フイルム株式会社内 (72)発明者 伊勢 俊大 (33)優先権主張国 日本(JP) (31)優先権主張番号 特願2000-80734(P2000-80734) 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真 (32)優先日 平成12年3月22日(2000.3.22) フイルム株式会社内 (74)代理人 100105647 (33)優先権主張国 日本(JP)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 新規ヘテロ環化合物、発光素子材料およびそれを使用した発光素子

(57) 【要約】

【課題】色純度に優れ、且つ発光特性が良好であり、また繰返し使用時での安定性に優れた発光素子材料および発光素子を提供する。

【解決手段】下記一般式 (I) で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料、及びこれを用いた発光素子。

一般式 (I)

$L-(A)_{m}$

(式中、Aは二つ以上の芳香族へテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Aで表されるヘテロ環基は同一または異ってもよい。mは2以上の整数を表す。 L は連結基を表す。)

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式(I)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【化1】

一般式(I)

$L \leftarrow A)_m$

(式中、Aは二つ以上の芳香族へテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Aで表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

【請求項2】 下記一般式(II)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【化2】

一般式([])

$L \leftarrow B)_m$

(式中、Bは二つ以上の5員環および/または6員環の 芳香族へテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Bで表さ れるヘテロ環基は同一または異なってもよい。mは2以 上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

【請求項3】 下記一般式 (III)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【化3】

一般式(III)

$$L = \left(\left\langle \left\langle \begin{matrix} N \\ X \end{matrix} \right\rangle \right\rangle_{m} \right)_{m}$$

(式中、XはO、S、S e、T e ま たはN -R e 表す。 R は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 Q_3 は芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 m は2 以上の整数を表す。 L は連結基を表す。)

【請求項4】 下記一般式(IV)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【化4】

一般式(IV)

$$L = \left(\begin{pmatrix} N \\ X \end{pmatrix} \right)_{\alpha} Q_{4}$$

(式中、XはO、S、Se、TeまたはN-Rを表す。 Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 Q_4 は含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 mは2以上の整数を表す。 Lは連結基を表す。)

【請求項5】 下記一般式(V)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【化5】

一般式 (V)

$$L = \left(\left\langle \begin{array}{c} N \\ X_5 \end{array} \right\rangle Q_5 \right)$$

(式中、 X_5 はO、SまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 Q_5 は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

【請求項6】 下記一般式(VI)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【化6】

一般式 (VI)

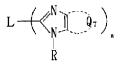
$$L = \left(\left\langle \left\langle \left\langle \right\rangle \right\rangle \right\rangle \left\langle \left\langle \right\rangle \right\rangle \right)$$

(式中、 X_6 はO、SまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 Q_6 は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。RはR2ないしR0整数を表す。R1はR2ないしR1を表す。R2ないしR2を表す。R3とは連結基を表す。R3

【請求項7】 下記一般式 (VII)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【化7】

一般式(VII)

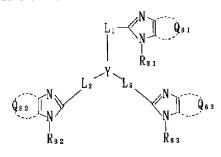


(式中、Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、rリール基またはヘテロ環基を表す。 Q_7 は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2ないし8の整数を表す。Lは連結基を表す。)

【請求項8】 下記一般式 (VIII) で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【化8】

一般式 (VIII)



(式中、 Q_{81} 、 Q_{82} およびは Q_{83} は、それぞれ6員の含窒素芳香族へテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 R_{81} 、 R_{82} および R_{83} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭

化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 L_1 、 L_2 および L_3 は、それぞれ連結基を表す。Yは窒素原子または1, 3, 5 - ベンゼントリイル基を表す。)

【請求項9】 下記一般式(IX)で表されることを特徴とする化合物。

【化9】

(式中、 R_{101} 、 R_{102} および R_{103} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 R_{104} 、 R_{105} および R_{106} は、それぞれ置換基を表す。 p_1 、 p_2 および p_3 は、それぞれ0ないし3の整数を表す。)

【請求項11】 下記一般式(XI)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【化11】

$$L = \begin{pmatrix} N \\ N \end{pmatrix} Q_3$$

(式中、 Q_3 は芳香族へテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 R_{11} は水素原子または置換基を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

【請求項12】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が請求項1~11記載の一般式

(I) ~ (XI) で表される化合物の少なくとも一種を 含有する層であることを特徴とする発光素子。

【請求項13】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が請求項1~11記載の一般式

(I) ~ (XI) で表される化合物の少なくとも一種を

(式中、 Q_{91} 、 Q_{92} およびは Q_{93} は、それぞれ6員の含窒素芳香族へテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 R_{91} 、 R_{92} および R_{93} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)

【請求項10】 下記一般式(X)で表されることを特徴とする化合物。

【化10】

 $(R_{104})_{p1}$

ポリマーに分散した層であることを特徴とする発光素子。

【請求項14】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、発光層と陰極との間の少なくとも一層が請求項1~11記載の一般式(I)~(XI)で表される化合物を少なくとも一種含有する層であることを特徴とする発光素子。

【請求項15】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、青色発光層と陰極との間の少なくとも一層が請求項1~11記載の一般式(I)~(XI)で表される化合物を少なくとも一種含有する層であることを特徴とする発光素子。

【請求項16】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、請求項1~11記載の一般式(I)~(XI)で表される化合物を少なくとも一種含有する層に青色発光材料を含有することを特徴とする発光素子。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、新規へテロ環化合物に関する。詳しくは電気エネルギーを光に変換して発光できる発光素子用材料および発光素子に関し、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア

等の分野に好適に使用できる発光素子に関する。

[0002]

【従来の技術】今日、種々の表示素子に関する研究開発が活発であり、中でも有機電界発光(EL)素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため、有望な表示素子として注目されている。例えば、有機化合物の蒸着により有機薄膜を形成する発光素子が知られている(アプライド フィジックス レターズ,51巻,913頁,1987年)。この文献に記載された発光素子はトリス(8-ヒドロキシキノリナト)アルミニウム錯体(Alq)を電子輸送材料として用い、正孔輸送材料(アミン化合物)と積層させることにより、従来の単層型素子に比べて発光特性を大幅に向上させている。

【0003】上記積層型発光素子の発光効率を更に改良 する手段として、蛍光色素をドープする方法が知られて いる。例えば、ジャーナル オブ アプライド フィジ ックス 65巻、3610頁、1989年に記載のクマ リン色素をドープした発光素子はドープしない素子に比 べて発光効率が大幅に向上している。この場合、用いる 蛍光性化合物の種類を変えることにより所望の波長の光 を取り出すことが可能であるが、電子輸送材料としてA 1 g を用いた場合、高輝度を得るために駆動電圧を高く すると、ドープした蛍光性化合物の発光の他にAlgの 緑色発光が観測されてくるため、青色を発光させる場合 には色純度の低下が問題になり、色純度を低下させない ホスト材料の開発が望まれている。これを改良するもの として特開平10-92578号、米国特許第5766 779号に特定のインドール誘導体が開示されている が、記載の化合物では高輝度発光のためには駆動電圧を 高くする必要があるなどの問題があり、低電圧で高輝度 発光可能な化合物の開発が望まれていた。また、発光効 率を高める方法として3-(4-ビフェニルイル)-4 -フェニルー5-(4-tert-ブチルフェニル)-(BCP) などのホールブロック性材料を用いる方法が 報告されているが、これら公知の材料では耐久性、特に 高温保存経時、連続発光での素子劣化が大きな問題とな っていた。また、色純度が良好で発光効率が高い従来の 素子は電荷輸送材料中に蛍光性色素を微量ドープしたも のであり、製造上素子特性の再現性を出すことが難しい ことや、色素の耐久性が低いために長時間使用した場合 に輝度の低下、色変化が起きるなどの問題があった。こ れを解決する手段として電荷輸送機能と発光機能を兼ね た材料の開発が望まれているが、これまで開発された材 料では蛍光性色素を高濃度で用いると、濃度消光、会合 等により高輝度発光が難しいといった問題があった。

【0004】一方、有機発光素子において高輝度発光を 実現しているものは有機物質を真空蒸着によって積層し ている素子であるが、製造工程の簡略化、加工性、大面 積化等の観点から塗布方式による素子作製が望ましい。 しかしながら、従来の塗布方式で作製した素子では発光 輝度、発光効率の点で蒸着方式で作製した素子に劣って おり、高輝度、高効率発光化が大きな課題となってい た。

[0005]

【発明が解決しようとする課題】本発明の第一の目的は、発光特性が良好であり、また繰り返し使用時での安定性に優れた発光素子用材料および発光素子の提供にある。本発明の第二の目的は、色純度に優れた発光素子およびそれを可能にする発光素子用材料の提供にある。本発明の第三の目的は、各種電子デバイス等に有効な新規へテロ環化合物を提供することにある。

[0006]

【課題を解決するための手段】この課題は下記手段によって達成された。

【0007】[1]下記一般式(I)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

[0008]

【化12】

一般式(1)

$L \leftarrow A)_n$

【0009】(式中、Aは二つ以上の芳香族へテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Aで表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。mは2以上の整数を表す。 Lは連結基を表す。)

[2] 下記一般式(II) で表される化合物であることを 特徴とする発光素子材料。

[0010]

【化13】

一般式(II)

$$L \leftarrow B)_n$$

【0011】(式中、Bは二つ以上の5員環および/または6員環の芳香族へテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Bで表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

[3] 下記一般式 (III)で表される化合物であることを 特徴とする発光素子材料。

[0012]

【化14】

一般式(III)

$$L = \left(\left\langle \begin{array}{c} N \\ Y \end{array} \right\rangle \left(Q_3 \right)$$

[4] 下記一般式 (IV) で表される化合物であることを 特徴とする発光素子材料。

[0014]

【化15】

一般式 (IV)

$$L = \left(\left\langle \begin{array}{c} N \\ X \end{array} \right\rangle \right)$$

【0015】 (式中、XはO、S、Se、TeまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 Q_4 は含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

[5] 下記一般式(V) で表される化合物であることを 特徴とする発光素子材料。

[0016]

【化16】

一般式 (V)

$$L - \left(\left\langle \begin{array}{c} N \\ X_5 \end{array} \right\rangle_{\mathfrak{m}} q_5 \right)_{\mathfrak{m}}$$

【0017】 (式中、 X_5 はO、SまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、Pリール基またはヘテロ環基を表す。 Q_5 は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

[6] 下記一般式 (VI) で表される化合物であることを 特徴とする発光素子材料。

[0018]

【化17】

一般式 (VI)

$$L = \left(\left\langle \left\langle X_{s} \right\rangle \right\rangle_{n} \right)_{n}$$

【0019】 (式中、 X_6 はO、SまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、 \mathcal{P} リール基またはヘテロ環基を表す。 Q_6 は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2ないし8の整数を表す。Lは連結基を表す。)

[7] 下記一般式 (VII)で表される化合物であることを 特徴とする発光素子材料。

[0020]

【化18】

一般式 (VII)

$$L = \left(\begin{array}{c} N \\ N \\ R \end{array} \right)_{\mathfrak{g}}$$

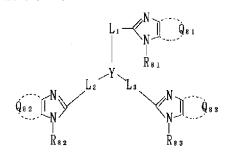
【0021】(式中、Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 Q_7 は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2ないし8の整数を表す。Lは連結基を表す。)

[8]下記一般式(VIII)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

[0022]

【化19】

一般式 (VIII)



【0023】(式中、 Q_{81} 、 Q_{82} およびは Q_{83} は、それぞれ6員の含窒素芳香族へテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 R_{81} 、 R_{82} および R_{83} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 L_1 、 L_2 および L_3 は、それぞれ連結基を表す。Yは窒素原子または1, 3, 5 -ベンゼントリイル基を表す。)

[9] 下記一般式 (IX) で表されることを特徴とする化合物。

[0024]

【化20】

【0025】(式 $\mathring{\mathbf{H}}^{32}_{\mathbf{Q}_{91}}$ 、 \mathbf{Q}_{92} お $\mathring{\mathbf{L}}^{32}$ は \mathbf{Q}_{93} は、それぞれ6員の含窒素芳香族へテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 \mathbf{R}_{91} 、 \mathbf{R}_{92} および \mathbf{R}_{93} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)

[10] 下記一般式(X) で表されることを特徴とする 化合物。

[0026]

【化21】

【0027】(式中、 R_{101} 、 R_{102} および R_{103} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 R_{104} 、 R_{105} および R_{106} は、それぞれ置換基を表す。 p_1 、 p_2 および p_3 は、それぞれのないし3の整数を表す。)

[11] 下記一般式(XI) で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

[0028]

【化22】

一般式 (XI)

$$L \xrightarrow{R_{11}} N Q_s$$

【0029】(式中、 Q_3 は芳香族へテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 R_{11} は水素原子または置換基を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

[12] 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が[1]~[11]記載の一般式(I)~

(XI) で表される化合物の少なくとも一種を含有する 層であることを特徴とする発光素子。

[13] 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、少なくとも一層が[1]~[11]記載の一般式(I)~

(XI) で表される化合物の少なくとも一種をポリマー に分散した層であることを特徴とする発光素子。

[14] 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、発光層と陰極との間の少なくとも一層が[1]~[11]記載の一般式(I)~(XI)で表される化合物を少なくとも一種含有する層であることを特徴とする発光素子。

[15]一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、青色発光層と陰極との間の少なくとも一層が〔1〕~〔1

1〕記載の一般式(I)~(XI)で表される化合物を 少なくとも一種含有する層であることを特徴とする発光 素子。 [16] 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄層を形成した発光素子において、

[1] \sim [11] 記載の一般式 (I) \sim (XI) で表される化合物を少なくとも一種含有する層に青色発光材料を含有することを特徴とする発光素子。

[0030]

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明 する。まず、一般式(I)で表される化合物について説 明する。Aは二つ以上の芳香族へテロ環が縮合したヘテ ロ環基を表し、Aで表されるヘテロ環基は同一または異 なってもよい。Aで表されるヘテロ環基として好ましく は5員環または6員環の芳香族へテロ環が縮合したもの であり、より好ましくは2ないし6個、更に好ましくは 2ないし3個、特に好ましくは2個の芳香族へテロ環が 縮合したものである。この場合のヘテロ原子として好ま しくは、N、O、S、Se、Te原子であり、より好ま しくはN、O、S原子であり、更に好ましくはN原子で ある。Aで表されるヘテロ環基を構成する芳香族ヘテロ 環の具体例としては、例えばフラン、チオフェン、ピラ ン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、 ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキ サゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジ アゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾ ール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはイミダ ゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジ ン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾールであり、よ り好ましくはイミダゾール、チアゾール、オキサゾー ル、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであ

【0031】Aで表される縮合環の具体例としては、例えばインドリジン、プリン、プテリジン、カルボリン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、ピラゾロイミダゾール、ピラゾロトリアゾール、ピラゾロピリミジン、ピラゾロトリアジン、トリアゾロピリジン、テトラザインデン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、イミダゾイミダゾール、イミダゾピリジン、イミダゾピリジン、イミダゾピリジン、オキサゾロピリジン、オキサゾロピリミジン、オキサゾロピリ

ジン、チアゾロピラジン、チアゾロピリミジン、チアゾロピリダジン、ピリジノピラジン、ピラジノピリダジン、ナフチリジン、イミダゾトリアジンなどが挙げられ、好ましくはイミダゾピリジン、イミダゾピリジン、イミダゾピリジン、オキサゾロピリジン、オキサゾロピリジン、チアゾロピリジン、チアゾロピリジン、チアゾロピリジン、チアゾロピリジン、ピラジノピラジンであり、更に好ましくはイミダゾピリジン、ピラジンにピラジン、ピラジノピラジン、ピラジノピラジンであり、サアゾロピリジン、ピリジノピラジンであり、要に好ましくはイミダゾピリジンである。

【0032】Aで表されるヘテロ環基は更に他の環と縮 合してもよく、また置換基を有してもよい。Aで表され るヘテロ環基の置換基としては、例えばアルキル基(好 ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~2 0、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメチ ル、エチル、iso-プロピル、tert-ブチル、n ーオクチル、nーデシル、nーヘキサデシル、シクロプ ロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げら れる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~30、 より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数 2~10であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニ ル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル 基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数 $2\sim20$ 、特に好ましくは炭素数 $2\sim10$ であり、例え ばプロパルギル、3ーペンチニルなどが挙げられ る。)、アリール基(好ましくは炭素数6~30、より 好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~ 12であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナ フチルなどが挙げられる。)、アミノ基(好ましくは炭 素数0~30、より好ましくは炭素数0~20、特に好 ましくは炭素数0~10であり、例えばアミノ、メチル アミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジル アミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノなどが挙げ られる。)、アルコキシ基(好ましくは炭素数1~3 0、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭 素数1~10であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブト キシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。)、 アリールオキシ基(好ましくは炭素数6~30、より好 ましくは炭素数 $6\sim20$ 、特に好ましくは炭素数 $6\sim1$ 2であり、例えばフェニルオキシ、1-ナフチルオキ シ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。)、アシル 基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数 $1 \sim 20$ 、特に好ましくは炭素数 $2 \sim 12$ であり、例え ばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが 挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは 炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に 好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカル ボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、ア リールオキシカルボニル基(好ましくは炭素数7~3 0、より好ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭 素数7~12であり、例えばフェニルオキシカルボニル などが挙げられる。)、アシルオキシ基(好ましくは炭 素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好 ましくは炭素数2~10であり、例えばアセトキシ、ベ ンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシルアミノ基 (好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2 ~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えば アセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられ る。)、アルコキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭 素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好 ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボ ニルアミノなどが挙げられる。)、アリールオキシカル ボニルアミノ基(好ましくは炭素数7~30、より好ま しくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~12 であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが 挙げられる。)、スルホニルアミノ基(好ましくは炭素 数 $1\sim30$ 、より好ましくは炭素数 $1\sim20$ 、特に好ま しくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルホニル アミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられ る。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数0~3 0、より好ましくは炭素数0~20、特に好ましくは炭 素数0~12であり、例えばスルファモイル、メチルス ルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスル ファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基(好 ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~2 0、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばカル バモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイ ル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アル キルチオ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましく は炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であ り、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられ る。)、アリールチオ基(好ましくは炭素数6~30、 より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数 6~12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられ る。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1~30、よ り好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1 ~12であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられ る。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1~30、 より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数 1~12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼン スルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基(好ま しくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~2 0、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばウレ イド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げら れる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数1~3 0、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭 素数1~12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フ

エニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ 基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、 塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ 基、カルボキシル基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、ス ルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好 ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~1 2であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素 原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリ ジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モル ホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベ ンズチアゾリル、カルバゾリル、アゼピニルなどが挙げ られる。)、シリル基(好ましくは炭素数3~40、よ り好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3 ~24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニル シリルなどが挙げられる。) などが挙げられる。これら の置換基は更に置換されてもよい。また置換基が二つ以 上ある場合は、同じでも異なってもよい。また、可能な 場合には連結して環を形成してもよい。

【0033】Aで表されるヘテロ環基の置換基として好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルファモイル基、スルファモイル基、スルファモイル基、

カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、ス ルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であ り、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリー ル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原 子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアル キル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ 基、芳香族へテロ環基であり、特に好ましくはアルキル 基、アリール基、アルコキシ基、芳香族へテロ環基であ る。mは2以上の整数を表し、好ましくは2ないし8、 より好ましくは2ないし6、更に好ましくは2ないし4 であり、特に好ましくは2または3であり、最も好まし くは3である。Lは連結基を表す。Lで表される連結基 として好ましくは、単結合、C、N、O、S、Si、G eなどで形成される連結基であり、より好ましくは単結 合、アルキレン、アルケニレン、アルキニレン、アリー レン、二価のヘテロ環(好ましくは芳香族ヘテロ環であ り、より好ましくはアゾール、チオフェン、フラン環か ら形成される芳香族へテロ環などである。) およびNと これらの組合わせから成る基であり、更に好ましくはア リーレン、二価の芳香族へテロ環およびNとこれらの組 合わせから成る基である。

【0034】Lで表される連結基の具体例としては、単結合の他、例えば以下のものが挙げられる。

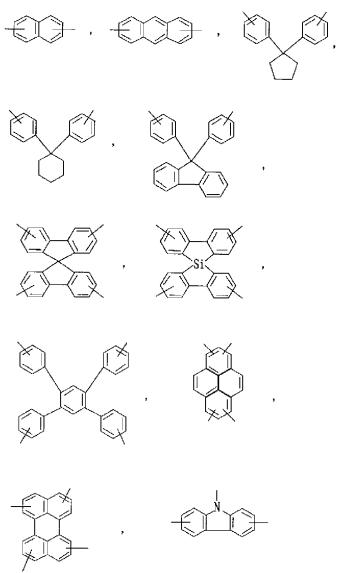
[0035]

【化23】

【化24】

[0036]

-9-



[0037]

[0038]

【0039】Lで表される連結基は置換基を有してもよく、置換基としては例えばAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用できる。Lの置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリールオキシ基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。

【0040】一般式(I)で表される化合物のうち、好ましくは下記一般式(II)で表される化合物である。

[0041]

【化27】

一般式 (II)

 $L \leftarrow B)_m$

【0042】式中、m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Bは二つ以上の5員環および/または6員環の芳香族へテロ環が縮合したヘテロ環基を表し、Bで表されるヘテロ環基として好ましくは5員環または6員環の芳香族へテロ環が2ないし6個縮合したものであり、更に好ましくは2ないし3個、特に好ましくは2個の芳香族ヘテロ環が縮合したものである。この場合のヘテロ原子として好ましくは、N、O、S、Se、Te原子であり、より好ましくはN、O、S原子であり、更に好ましくはN原子である。Bで表されるヘテロ環基を構成する芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばフラン、チオ

フェン、ピラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはイミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾールであり、より好ましくはイミダゾール、チアゾール、オキサゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリ

【0043】Bで表される縮合環の具体例としては、例 えばインドリジン、プリン、プテリジン、カルボリン、 ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、ピラゾロイ ミダゾール、ピラゾロトリアゾール、ピラゾロピリミジ ン、ピラゾロトリアジン、トリアゾロピリジン、テトラ ザインデン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾー ル、イミダゾイミダゾール、イミダゾピリジン、イミダ ゾピラジン、イミダゾピリミジン、イミダゾピリダジ ン、オキサゾロピリジン、オキサゾロピラジン、オキサ ゾロピリミジン、オキサゾロピリダジン、チアゾロピリ ジン、チアゾロピラジン、チアゾロピリミジン、チアゾ ロピリダジン、ピリジノピラジン、ピラジノピラジン、 ピラジノピリダジン、ナフチリジン、イミダゾトリアジ ンなどが挙げられ、好ましくはイミダゾピリジン、イミ ダゾピラジン、イミダゾピリミジン、イミダゾピリダジ ン、オキサゾロピリジン、オキサゾロピラジン、オキサ ゾロピリミジン、オキサゾロピリダジン、チアゾロピリ ジン、チアゾロピラジン、チアゾロピリミジン、チアゾ ロピリダジン、ピリジノピラジン、ピラジノピラジンで あり、更に好ましくはイミダゾピリジン、オキサゾロピ リジン、チアゾロピリジン、ピリジノピラジン、ピラジ ノピラジンであり、特に好ましくはイミダゾピリジンで ある。Bで表されるヘテロ環基は置換基を有してもよ く、置換基としては一般式(I)におけるAで表される ヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また 好ましい置換基も同様である。

【0044】一般式(I)で表される化合物のうち、より好ましくは下記一般式(III)又は(XI)で表される化合物である。

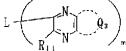
[0045]

【化28】

一般式(III)

$$L = \begin{pmatrix} N \\ X \end{pmatrix} Q_3 \end{pmatrix}_{m}$$

一般式(XI)



【0046】一般式 (III) について説明する。m、L は、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であ り、また好ましい範囲も同様である。XはO、S、S e、TeまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭 化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Qgは 芳香族へテロ環を形成するに必要な原子群を表す。Rで 表される脂肪族炭化水素基として好ましくは、アルキル 基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数 $1 \sim 12$ 、特に好ましくは炭素数 $1 \sim 8$ であり、例えば メチル、エチル、isoープロピル、tertーブチ ル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シ クロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが 挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~ 20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは 炭素数2~8であり、例えばビニル、アリル、2-ブテ ニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニ ル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素 数2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例え ばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。) であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基であ

【0047】Rで表されるアリール基として好ましくは 炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に 好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、2 ーメチルフェニル、3ーメチルフェニル、4ーメチルフ ェニル、4ーメトキシフェニル、3ートリフルオロメチ ルフェニル、ペンタフルオロフェニル、2-ビフェニリ ル、3-ビフェニリル、4-ビフェニリル、1-ナフチ ル、2-ナフチル、1-ピレニルなどが挙げられる。R で表されるヘテロ環基は、単環または縮環のヘテロ環基 (好ましくは炭素数 $1 \sim 20$ 、好ましくは炭素数 $1 \sim 1$ 2、更に好ましくは炭素数2~10のヘテロ環基)であ り、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン 原子の少なくとも一つを含む芳香族へテロ環基である。 Rで表されるヘテロ環基の具体例としては、例えばピロ リジン、ピペリジン、ピロール、フラン、チオフェン、 イミダゾリン、イミダゾール、ベンズイミダゾール、ナ フトイミダゾール、チアゾリジン、チアゾール、ベンズ チアゾール、ナフトチアゾール、イソチアゾール、オキ サゾリン、オキサゾール、ベンズオキサゾール、ナフト

オキサゾール、イソオキサゾール、セレナゾール、ベンズセレナゾール、ナフトセレナゾール、ピリジン、キノリン、イソキノリン、インドール、インドレニン、ピラゾール、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、インダゾール、プリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、フェナントリジン、プテリジン、フェナントリジン、プテリジン、フェナントリジン、デオフェン、ピリジン、キノリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンであり、特に好ましくはキノリンである。

【0048】Rで表される脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基は置換基を有してもよく、置換基としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。Rとして好ましくは、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアリール基、芳香族アゾール基である。

【0049】 Xとして好ましくはO、S、N-Rであり、より好ましくはO、N-Rであり、更に好ましくは N-Rであり、特に好ましくはN-Ar(Ar はアリール基、芳香族アゾール基であり、より好ましくは炭素数 $6\sim30$ のアリール基、炭素数 $2\sim30$ の芳香族アゾール基、更に好ましくは炭素数 $6\sim20$ のアリール基、炭素数 $2\sim16$ の芳香族アゾール基、特に好ましくは炭素数 $6\sim12$ のアリール基、炭素数 $2\sim10$ の芳香族アゾール基である。)である。

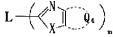
【0050】Q₃ は芳香族ヘテロ環を形成するに必要な 原子群を表す。Q₃で形成される芳香族へテロ環として 好ましくは5または6員の芳香族へテロ環であり、より 好ましくは5または6員の含窒素芳香族ヘテロ環であ り、更に好ましくは6員の含窒素芳香族へテロ環であ る。Q。で形成される芳香族へテロ環の具体例として は、例えばフラン、チオフェン、ピラン、ピロール、イ ミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミ ジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチ アゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサ ジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾー ルなどが挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、ピ リミジン、ピリダジンであり、より好ましくはピリジ ン、ピラジンであり、更に好ましくはピリジンである。 Q₃で形成される芳香族ヘテロ環は更に他の環と縮合環 を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基 としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基 の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置 換基も同様である。

【0051】一般式 (III)で表される化合物のうち、更

に好ましくは下記一般式(IV)で表される化合物である。

【0052】 【化29】

一般式 (IV)

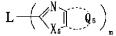


【0053】式中、m、Lは、それぞれ一般式(I)に おけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様で ある。Xは一般式(III)におけるそれと同義であり、ま た好ましい範囲も同様である。Q4 は含窒素芳香族ヘテ ロ環を形成するに必要な原子群を表す。Q4で形成され る含窒素芳香族ヘテロ環として好ましくは5または6員 の含窒素芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは6員の 含窒素芳香族へテロ環である。Q₄で形成される含窒素 芳香族へテロ環の具体例としては、例えばピロール、イ ミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミ ジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチ アゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサ ジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾー ルなどが挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、ピ リミジン、ピリダジンであり、より好ましくはピリジ ン、ピラジンであり、更に好ましくはピリジンである。 Q』で形成される芳香族へテロ環は更に他の環と縮合環 を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基 としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基 の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置 換基も同様である。

【0054】一般式 (III)で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式 (V) で表される化合物である。

【0055】 【化30】

一般式 (V)



【0056】式中、m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 X_5 はO、SまたはN-Rを表す。Rは一般式(I II)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 Q_5 は6員の含窒素芳香族へテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 Q_5 で形成される6員の含窒素芳香族へテロ環の具体例としては、例えばピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジンなどが挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであり、より好ましくはピリジン、ピラジンであり、更に好ましくはピリジンである。 Q_5 で形成される6員の含窒素芳香族へテロ環は更に他の環と縮

合環を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。

【0057】一般式(III)で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式(VI)で表される化合物である。

【0058】 【化31】

一般式 (VI)

 $L = \left(\left\langle \left\langle \left\langle \left\langle \right\rangle \right\rangle \right\rangle \right\rangle \right)$

【0059】式中、Lは一般式(I)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 X_6 は一般式(V)における X_5 と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 Q_6 は一般式(V)における Q_5 と同義であり、また好ましい範囲も同様である。1 は 2 ないし8の整数を表し、好ましくは2 ないし6、より好ましくは2 ないし4 であり、更に好ましくは2 または3 であり、特に好ましくは3 である。一般式(III)で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式(VII)で表される化合物である。

【0060】 【化32】

一般式 (VII)

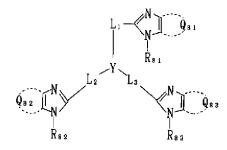
【0061】式中、Lは一般式(I)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Rは一般式(III)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 Q_7 は一般式(V)における Q_5 と同義であり、また好ましい範囲も同様である。R1)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0062】一般式(III)で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式(VIII)で表される化合物である。

[0063]

【化33】

一般式(VIII)



【0064】式中、 R_{81} 、 R_{82} および R_{83} は、それぞれ 一般式 (III)におけるRと同義であり、また好ましい範 囲も同様である。 Q_{81} 、 Q_{82} および Q_{83} は、それぞれ一 般式 (V) における Q_5 と同義であり、また好ましい範 囲も同様である。L、、L。およびL。は、それぞれ一般 式(I) におけるLと同義である。 L_1 、 L_2 、 L_3 と して好ましくは、単結合、アリーレン、二価の芳香族へ テロ環およびこれらの組合わせから成る連結基であり、 より好ましくは単結合、ベンゼン、ナフタレン、アント ラセン、ピリジン、ピラジン、チオフェン、フラン、オ キサゾール、チアゾール、オキサジアゾール、チアジア ゾール、トリアゾールおよびこれらの組合わせから成る 連結基であり、更に好ましくは単結合、ベンゼン、チオ フェンおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、 特に好ましくは単結合、ベンゼンおよびこれらの組合わ せから成る連結基であり、最も好ましくは単結合であ る。L₁、L₂、L₃は置換基を有してもよく、置換基 としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基 の置換基として挙げたものが適用できる。

【0065】Yは窒素原子または1,3,5ーベンゼントリイル基を表すが、後者は2,4,6位に置換基を有してもよく、置換基としては例えばアルキル基、アリール基、ハロゲン原子などが挙げられる。Yとして好ましくは窒素原子または無置換1,3,5ーベンゼントリイル基であり、より好ましくは無置換1,3,5ーベンゼントリイル基である。一般式(III)で表される化合物のうち、特に好ましくは下記一般式(IX)で表される化合物である。

[0066]

【化34】

【0.067】式中、 R_{91} 、 R_{92} および R_{93} は、それぞれ一般式 (III)におけるRと同義であり、また好ましい範

囲も同様である。 Q_{91} 、 Q_{92} および Q_{93} は、それぞれ一般式 (V) における Q_5 と同義であり、また好ましい範囲も同様である。一般式 (III)で表される化合物のうち、最も好ましくは下記一般式 (X) で表される化合物

である。 【0068】 【化35】

一般式 (X)
$$(R_{104})_{p1}$$
 N $N-R_{101}$ $R_{106})_{p3}$ R_{102} R_{103}

【0069】式中、 R_{101} 、 R_{102} および R_{103} は、それぞれ一般式(X)におけるRと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 R_{104} 、 R_{105} および R_{106} は、それぞれ置換基を表し、置換基としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。また可能な場合、置換基同士が連結して環を形成してもよい。 p_1 、 p_2 および p_3 は、それぞれ0ないし3の整数を表し、好ましくは0ないし2、より好ましくは0または1、更に好ましくは0である。

【0070】次に一般式(XI)について説明する。 m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義 であり、また好ましい範囲も同様である。Qaは一般式 (III)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も 同様である。R11は水素原子または置換基を表す。R11 で表される置換基としては例えば一般式(I)における Aで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適 用できる。Riiで表される置換基として好ましくは、脂 肪族炭化水素基、アリール基、芳香族へテロ環基であ り、より好ましくは、アルキル基(好ましくは炭素数1 ~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましく は炭素数1~8であり、例えばメチル、エチル、iso ープロピル、tertーブチル、nーオクチル、nーデ シル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペン チル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アリール 基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数 $6 \sim 20$ 、特に好ましくは炭素数 $6 \sim 12$ であり、例え ばフェニル、2-メチルフェニル、3-メチルフェニ ル、4-メチルフェニル、4-メトキシフェニル、3-トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニ ル、1-ナフチル、2-ナフチルなどが挙げられ る。)、芳香族ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~2 0、好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数 2~10の芳香族へテロ環基であり、より好ましくは窒 素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも 一つを含む芳香族へテロ環基である。芳香族へテロ環と

しては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピロール、フ ラン、チオフェン、イミダゾリン、イミダゾール、ベン ズイミダゾール、ナフトイミダゾール、チアゾリジン、 チアゾール、ベンズチアゾール、ナフトチアゾール、イ ソチアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、ベンズオ キサゾール、ナフトオキサゾール、イソオキサゾール、 セレナゾール、ベンズセレナゾール、ナフトセレナゾー ル、ピリジン、キノリン、イソキノリン、インドール、 インドレニン、ピラゾール、ピラジン、ピリミジン、ピ リダジン、トリアジン、インダゾール、プリン、フタラ ジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シン ノリン、プテリジン、フェナントリジン、プテリジン、 フェナントロリン、テトラザインデン、カルバゾールな どが挙げられ、好ましくはフラン、チオフェン、ピリジ ン、キノリン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、ト リアジン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、 キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェ ン、ピリジン、キノリンであり、更に好ましくはキノリ ンである。) であり、更に好ましくはアリール基、芳香 族へテロ環基である。R」で表される置換基は、更に置 換されてもよく、また可能な場合には連結して環を形成 してもよい。

【0071】一般式(XI)で表される化合物のうち、より好ましくは下記一般式(XII)で表される化合物である。

[0072]

【化36】

一般式 (XII)

$$L \left(\begin{array}{c} N \\ N \end{array} \right) Q_{12}$$

【0073】式中、m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 Q_1 は一般式(IV)における Q_4 と同義であ

り、また好ましい範囲も同様である。 R_{11} は一般式(XI)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0074】一般式 (XII) で表される化合物のうち、 更に好ましくは下記一般式 (XIII)で表される化合物である。

[0075]

【化37】

一般式 (XIII)

$$L \xrightarrow{R_{11}} N Q_{13}$$

【0076】式中、m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 Q_{13} は一般式(V)における Q_5 と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 R_{11} は一般式(XI)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0077】一般式(XI)で表される化合物のうち、特に好ましくは下記一般式(XIV)で表される化合物である。

[0078]

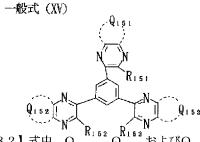
【化38】

【0079】式中、 L_1 、 L_2 、 L_3 およびYは、それぞれ一般式(VIII)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 Q_{141} 、 Q_{142} および Q_{143} は、それぞれ一般式(V)における Q_5 と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 R_{141} 、 R_{142} および R_{143} は、それぞれ一般式(X I)における R_{11} と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0080】一般式(XI)で表される化合物のうち、 最も好ましくは下記一般式(XV)で表される化合物で ある。

[0081]

【化39】



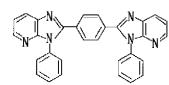
【0082】式中、 $Q_{151}^{n_1 b_2}$ 、 $Q_{152}^{n_1 b_2}$ および Q_{153} は、それぞれ一般式(V)における Q_5 と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 R_{151} 、 R_{152} および R_{153} は、それぞれ一般式(XI)における R_{11} と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0083】以下に本発明の一般式(I)で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

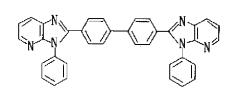
[0084]

【化40】

【0085】 【化41】



2.

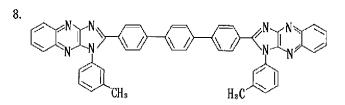


3.

4.

5

6



【0086】 【化42】

14.

【0087】 【化43】

16.

19.

22.

20.

23.

【0089】 【化45】 【0090】 【化46】

26.

【0091】 【化47】

28.

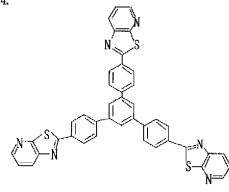
29.

【0092】 【化48】

32.

【0093】 【化49】

34.



35.

【0094】 【化50】

【0095】 【化51】

37.
$$\begin{array}{c} N \\ N \\ N \end{array}$$

39,

40.

41.

[0096]

【化52】

43.

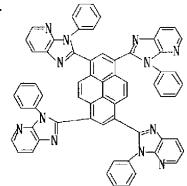
[0097]

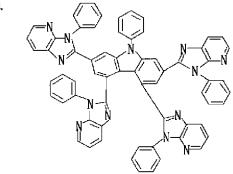
45.

[0098]

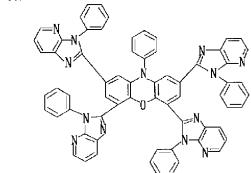
47.

【0099】 【化55】

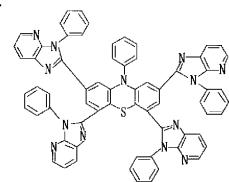




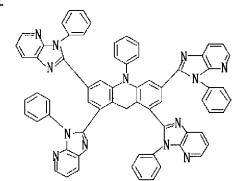
50.



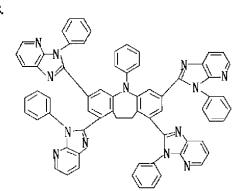
【0100】 【化56】



52.



53.

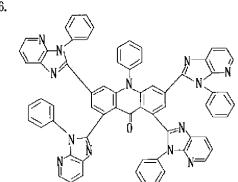


【0101】 【化57】

55.

58.

56.



59.

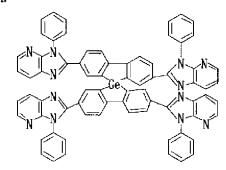
【0102】 【化58】

【0103】 【化59】

62.

【0104】 【化60】

64.



65.

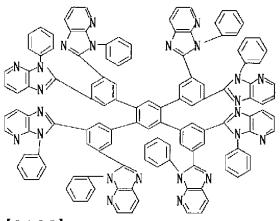
質量平均分子量 16,500 (ポリスチレン換算)

【0105】 【化61】

68.

69.

【0107】 【化63】



【0108】 【化64】

73.

76.

【0110】 【化66】

78.

79.

【0111】

80.

【0112】 【化68】

【0113】 【化69】

86.
$$\leftarrow CH_2 - CH \rightarrow_m$$

$$N \longrightarrow N \longrightarrow N$$

$$CH_3$$

質量平均分子量 21,000 (ポリスチレン換算)

87.
$$\leftarrow CH_2 - CH \rightarrow_m$$
 $\rightarrow CH_3$

質量平均分子量 14,000 (ポリスチレン換算) 【0114】 【化70】

88.
$$\leftarrow CH_2 - CH \xrightarrow{\text{in}} \leftarrow CH_2 - CH \xrightarrow{\text{in}}$$

質量平均分子量 17,000 (ポリスチレン換算) m:n=1:!(モル比)

【0115】 【化71】

[0116]

[0117]

[0118]

[0119]

【0120】一般式 (I) \sim (XV) で表される本発明の 化合物は、特公昭 44-23025 号、同48-8842 号、特開昭 53-6331 号、特開平 10-92578 号、米国特許 3,449,255 号、同5,766,779 号、J. Am. Chem. Soc.,94,2414 (1972)、Helv. Chim. Acta,63,413 (1980)、Liebigs Ann. C

hem., 1423 (1982) などに記載の方法を参 考にして合成できる。

【0121】以下に本発明の化合物の合成法について具体例をもって説明する。

合成例1. 例示化合物2の合成

[0122]

【化76】

【0123】1-1. 化合物2aの合成

2ークロロー3ーニトロピリジン50.8g(0.320モル)、炭酸カリウム90.8g(0.657モル)、ヨウ化銅(I)7.90g(0.0416モル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、アニリン45.7g(0.490モル)を加えた。5時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物2aを45.7g(0.21モル)得た。収率66%

【0124】1-2. 化合物2bの合成

化合物2a 17.0g(0.0790モル)をテトラヒドロフラン170ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイトナトリウム69.0g(0.396モル)/水220ミリリットルの溶液を滴下した。1時間攪拌した後、酢酸エチル170ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム13.6g(0.162モル)/水140ミリリッ

トルの溶液を滴下した。更に4, 4'ービフェニルジカルボニルクロリド10.0g(0.0358モル)/酢酸エチル100ミリリットルの溶液を滴下し、室温下5時間攪拌した。析出した固体を濾取し、水、次いで酢酸エチルで洗浄することにより化合物2bを16.0g(0.0277モル)得た。収率77%

【0125】1-3. 例示化合物2の合成

化合物2b 10.0g(0.0173モル)、pートルエンスルホン酸一水和物2.3g(0.0121モル)にキシレン300ミリリットルを加え、窒素雰囲気下6時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、析出した固体を濾取し、ジメチルホルムアミド/アセトニトリルにて再結晶することにより例示化合物2を5.20g(9.62ミリモル)得た。収率57%

融点:298~300℃

【0126】合成例2. 例示化合物18の合成

[0127]

例示化合物 2

【化77】

2a (R=phenyl)

19a (R≈3-methylphenyl)

20a (R=4-tert-butylphenyl)

21a (R=2-methylphenyl)

24a (R=8-quinolyl)

$$\begin{array}{c|c}
1) & Na_{2}S_{2}O_{4} \\
\hline
2) & 0 \\
 & C-C1 \\
\hline
 & C-C1 \\
\hline
 & C-C1 \\
\hline
 & 0 & 0
\end{array}$$

18b (R=phenyl)

19b (R=3-methylphenyl)

20b (R=4-tert-butylphenyl)

21b (R=2-methylphenyl)

24b (R=8-quinoly1) 【化78】

[0128]

例示化合物18 (R=phenyl)

例示化合物19 (R=3-methylphenyl)

例示化合物20 (R=4-tert-buty1phenyl)

例示化合物21 (R=2-methylphenyl)

例示化合物24 (R=8-quinoly1)

【0129】2-1. 化合物18bの合成 化合物2a 15.0g(0.0697モル)をテトラヒドロフラン150ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイトナトリウム60.9g(0.345モル)/水200ミリリットルの溶液を滴下した。2時間攪拌した後、酢酸エチル150ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム12.0g(0.143モル)/水120ミリリットルの溶液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド5.2g(0.0196モル)/酢酸エチル50ミリリット

ルの溶液を滴下し、室温下3時間攪拌した。反応液に飽和食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10/1(vo1/vo1))にて精製した後、ジメチルホルムアミド/アセトニトリルにて再結晶することにより化合物18bを4.1g(5.76ミリモル)得た。収率29%。

【0130】2-2. 例示化合物18の合成

化合物 18 b 3.70 g (5.20ミリモル)、pートルエンスルホン酸一水和物 0.7 g (3.68ミリモル)にキシレン100ミリリットルを加え、窒素雰囲気下3時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=20/1 (vol/vol))にて精製した後、クロロホルム/メタノールにて再結晶することにより例示化合物 18を1.70 g (2.58ミリモル)得た。収率50%。融点:279~281℃

【0131】合成例3.例示化合物19の合成3-1.化合物19aの合成2-クロロ-3-ニトロピリジン50.0g(0.315モル)、炭酸カリウム90.8g(0.657モル)、ラウ化銅(I)7.90g(0.0416モル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、mートルイジン45.0g(0.420モル)を加えた。8時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物19aを51.0g(0.222モル)得た。収率71%

【0132】3-2. 化合物19bの合成 化合物19a 32.5g(0.142モル)をテトラ ヒドロフラン320ミリリットルに溶解し、室温にて窒 素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイト ナトリウム124g (0.712モル) /水320ミリ リットルの溶液を滴下し、次いでメタノール100ミリ リットルを加えた。1時間攪拌した後、酢酸エチル38 0ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム24. 4g(0.290モル)/水55ミリリットルの溶液を 滴下した。更にトリメシン酸クロリド10.5g(0. 0396モル) /酢酸エチル100ミリリットルの溶液 を滴下し、室温下3時間攪拌した。反応液に飽和食塩水 を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩 水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥 した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグ ラフィー (展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10 /1 (vol/vol))にて精製することにより化合 物19bを10.2g(0.0135モル)得た。収率 3 4 %

【0133】3-3. 例示化合物19の合成 化合物19b 3. 30g(4.38ミリモル)、pートルエンスルホン酸一水和物0.5g(2.63ミリモル)にキシレン50ミリリットルを加え、窒素雰囲気下3時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=20/1(vol/vol))にて精製した後、クロロ ホルム/メタノールにて再結晶することにより例示化合物 1981. 97g (2. 81ミリモル) 得た。収率 64%。

融点:258~259℃

【0134】合成例4. 例示化合物20の合成4-1. 化合物20aの合成2-クロロー3-ニトロピリジン45. 5g(0.286モル)、炭酸カリウム81. 1g(0.587モル)、ヨウ化銅(I)7. 10g(0.0373モル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、4-tertーブチルアニリン40.0g(0.268モル)を加えた。8時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物20aを52.0g(0.192モル)得た。収率72%

【0135】4-2. 化合物20bの合成 化合物20a 34.8g(0.128モル)をテトラ ヒドロフラン350ミリリットルに溶解し、室温にて窒 素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイト ナトリウム112g (0.643モル) /水320ミリ リットルの溶液を滴下し、次いでメタノール90ミリリ ットルを加えた。1時間攪拌した後、酢酸エチル350 ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム22.0 g (0.262モル) /水50ミリリットルの溶液を滴 下した。更にトリメシン酸クロリド9.5g(0.03 58モル) / 酢酸エチル90ミリリットルの溶液を滴下 し、室温下2時間攪拌した。反応液に飽和食塩水を加 え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で 洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥し た。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラ フィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10/ 1 (vol/vol)) にて精製することにより化合物 20bを12.0g(0.0136モル)得た。収率3

【0136】4-3. 例示化合物20の合成化合物20b 3.00g(3.41ミリモル)、pートルエンスルホン酸一水和物0.3g(1.58ミリモル)にキシレン50ミリリットルを加え、窒素雰囲気下3時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、析出した固体を濾取した後、クロロホルム/メタノールにて再結晶することにより例示化合物20を2.06g(2.49ミリモル)得た。収率73%。融点:300℃以上

【0137】合成例5. 例示化合物21の合成5-1. 化合物21aの合成2-クロロー3-ニトロピリジン50. 0g(0.315モル)、炭酸カリウム90. 8g(0.657モル)、ヨウ化銅(I)7.90g(0.0416モ

ル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、oートルイジン45.0g(0.420モル)を加えた。8時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物21aを46.3g(0.202モル)得た。収率64%

【0138】5-2. 化合物21bの合成 化合物21a 32.5g(0.142モル)をテトラ ヒドロフラン320ミリリットルに溶解し、室温にて窒 素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイト ナトリウム124g(0.712モル)/水320ミリ リットルの溶液を滴下し、次いでメタノール100ミリ リットルを加えた。1時間攪拌した後、酢酸エチル38 0ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム24. 4g(0.290モル)/水55ミリリットルの溶液を 滴下した。更にトリメシン酸クロリド10.5g(0. 0396モル) /酢酸エチル100ミリリットルの溶液 を滴下し、室温下3時間攪拌した。反応液に飽和食塩水 を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩 水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥 した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグ ラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10 /1 (vol/vol)) にて精製することにより化合 物21bを8.5g(0.0112モル)得た。収率2 8 %。

【0139】5-3. 例示化合物21の合成化合物21b 3. 30g(4.38ミリモル)、pートルエンスルホン酸一水和物0.5g(2.63ミリモル)にキシレン50ミリリットルを加え、窒素雰囲気下7時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=20/1(vol/vol))にて精製した後、クロロホルム/アセトニトリルにて再結晶することにより例示化合物21を2.02g(2.88ミリモル)得た。収率66%。融点:250℃

【0140】合成例6. 例示化合物24の合成6-1. 化合物24aの合成2-クロロ-3-ニトロピリジン59. 0g(0.347モル)、炭酸カリウム105g(0.760モル)、ヨウ化銅(I)9.40g(0.0494モル)、トル

エン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、8-アミノキノリン75.0g(0.520モル)を加えた。16時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物24aを27.0g(0.102モル)得た。収率29%

【0141】6-2. 化合物24bの合成 化合物24a 25.0g(93.9ミリモル)をテト ラヒドロフラン220ミリリットルに溶解し、室温にて 窒素雰囲気下攪拌しているところへハイドロサルファイ トナトリウム82.2g(0.472モル)/水420 ミリリットルの溶液を滴下し、次いでメタノール70ミ リリットルを加えた。1時間攪拌した後、酢酸エチル3 80ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム2 4. 4g(0.290モル)/水55ミリリットルの溶 液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド7.55g (28.4ミリモル)/酢酸エチル100ミリリットル の溶液を滴下し、室温下3時間攪拌した。反応液に飽和 食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽 和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムによ り乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロ マトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール =10/1(vol/vol))にて精製することによ り化合物24bを7.86g(9.09ミリモル)得 た。収率32%。

融点:384℃

【0143】合成例7.

[0144]

【化79】

例示化合物1 0 1

【0145】7-1. 化合物101bの合成 化合物2a50.0g(0.232モル)をテトラヒド ロフラン500ミリリットルに溶解させ、窒素雰囲気 下、室温で攪拌しているところに、ハイドロサルファイ トナトリウム200g(1.149モル)/水700ミ リリットルの溶液を滴下した。更にメタノール20ミリ リットルを加えて、1時間攪拌した。次に、酢酸エチル 500ミリリットルを加えて、炭酸水素ナトリウム40 g(0.476モル)/水400ミリリットルの溶液を 加えた。更に5-ブロモイソフタロイルクロリド65. 4g(0.232モル)/酢酸エチル150ミリリット ルの溶液を滴下し、室温で5時間攪拌した。酢酸エチル で抽出し、水、飽和食塩水で順次洗浄した後、無水硫酸 マグネシウムで乾燥し、溶媒を減圧留去した。シリカゲ ルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒:クロロホル ム) で精製した後、クロロホルム/ヘキサンで再結晶す ることにより化合物101bを29.6g(0.051 モル) 得た。収率22%。

【0146】7-2. 化合物101cの合成 化合物101b30g(0.05モル)をキシレン1リットルに溶解させ、p-トルエンスルホン酸一水和物4.7g(0.025モル)を加え、窒素雰囲気下、2時間加熱還流しながら共沸脱水を行った。反応液を室温まで冷却した後、析出した固体を濾取し、エタノール/クロロホルムで再結晶することにより、化合物101cを16.3g(0.03モル)得た。収率58%。

【0147】7-3. 例示化合物101の合成 化合物101c500ミリグラム(0. 92ミリモル) と化合物101d332ミリグラム(1.01ミリモル)をエチレングリコールジメチルエーテル20ミリリットルおよび水10ミリリットルに懸濁させた。この懸濁液に炭酸ナトリウム214.5ミリグラム(2.02ミリモル)、パラジウムカーボン15ミリグラム、トリフェニルホスフィン12ミリグラムを加え、2時間加熱還流した。加熱停止後、熱時濾過で触媒を除き、濾液を酢酸エチルで抽出後、硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒留去した。残渣をクロロホルムから再結晶し、例示化合物101を180ミリグラム(0.27ミリモル)得た。収率29%。

【0148】次に、本発明の化合物を含有する発光素子に関して説明する。本発明の化合物を含有する発光素子の有機層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、インクジェット法、印刷法などの方法が用いられ、特性面、製造面で抵抗加熱蒸着、コーティング法が好ましい。

【0149】本発明の化合物を発光素子用材料として用いた場合、ホール注入・輸送層、電子注入・輸送層、発光層のいずれに用いてもよいが、電子注入・輸送層および/または発光層として用いることが好ましい。

【0150】本発明の発光素子は陽極、陰極の一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の

材料を用いることができる。

【0151】陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層な どに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化 物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用 いることができ、好ましくは仕事関数が4eV以上の材 料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化イ ンジウム、酸化インジウムスズ(ITO)等の導電性金 属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金 属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物 または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物 質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなど の有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物な どが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、 特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好 ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能である が、通常 $10nm\sim5\mu$ mの範囲のものが好ましく、よ り好ましくは $50nm\sim1\mu$ mであり、更に好ましくは 100nm~500nmである。

【0152】陽極は通常、ソーダライムガラス、無アル カリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが 用いられる。ガラスを用いる場合、その材質について は、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アル カリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライ ムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施 したものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機 械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガ ラスを用いる場合には、通常 0.2 mm以上、好ましく は0.7mm以上のものを用いる。陽極の作製には材料 によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場 合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着 法、化学反応法(ゾルーゲル法など)、酸化インジウム スズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極は 洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、 発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場 合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的であ る。

【0153】陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属(例えばLi、Na、K、Cs等)またはそのフッ化物、酸化物、アルカリ土類金属(例えばMg、Ca等)またはそのフッ化物、酸化物、 を、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウムーカリウム合金またはそれらの混合金属、リチウムーアルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウムー銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテリビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4eV以

下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウムーアルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウムー銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常 $10nm\sim 5\mu m$ の範囲のものが好ましく、より好ましくは $50nm\sim 1\mu m$ であり、更に好ましくは $100nm\sim 1\mu m$ である。陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百 Ω / \Box 以下が好ましい。

【0154】発光層の材料は、電界印加時に陽極または 正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができ ると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を 注入することができる機能や、注入された電荷を移動さ せる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させ る機能を有する層を形成することができるものであれば 何でもよい。発光層に用いる化合物としては励起一重項 状態から発光するもの、励起三重項状態から発光するも ののいずれでもよく、例えば本発明の化合物のほか、例 えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘 **導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導** 体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導 体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタルイミド 誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘 導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピ ラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチ リルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロ ピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、シクロ ペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジ メチリディン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯 体、遷移金属錯体(例えば、トリス(2ーフェニルピリ ジン) イリジウム (III)などのオルソメタル化錯体等) や希土類錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフ ェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン、ポリ フルオレン等のポリマー化合物等が挙げられる。発光層 の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm~ 5 μ mの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 n m $\sim 1 \mu \text{ m}$ であり、更に好ましくは $10 \text{ nm} \sim 500 \text{ nm}$ である。発光層の形成方法は、特に限定されるものでは ないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、 分子積層法、コーティング法(スピンコート法、キャス ト法、ディップコート法など)、インクジェット法、印 刷法、LB法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加 熱蒸着、コーティング法である。

【0155】正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から

注入された電子を障壁する機能のいずれかを有している ものであればよい。その具体例としては、カルバゾール 誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オ キサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリ ールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘 導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導 体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン 誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチ ルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化 合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリディン系 化合物、ポリフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、 ポリ (N-ビニルカルバゾール) 誘導体、アニリン系共 重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導 電性高分子オリゴマー、カーボン膜等が挙げられる。正 孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものでは ないが、通常 $1 n m \sim 5 \mu m$ の範囲のものが好ましく、 より好ましくは $5 nm \sim 1 \mu m$ であり、更に好ましくは 10nm~500nmである。正孔注入層、正孔輸送層 は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造 であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層か らなる多層構造であってもよい。正孔注入層、正孔輸送 層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記正孔 注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティング する方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコー ト法など)、インクジェット法、印刷法などが用いられ る。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または 分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩 化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチ ルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエ ステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリ ブタジエン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、炭化水 素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エ チルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタ ン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド 樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0156】電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。好ましくは電子注入層及び/又は電子輸送層に本発明の化合物を含有するものであるが、本発明の化合物の他の材料を用いることもできる。その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアブール誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8ーキノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子と

する金属錯体に代表される各種金属錯体等が挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常 $1 nm \sim 5 \mu m$ の範囲のものが好ましく、より好ましくは $5 nm \sim 1 \mu m$ であり、更に好ましくは $10 nm \sim 500 nm$ である。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複響がある多層構造であってもよい。電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)、インクジェット法、印刷法などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

【0157】保護層の材料としては水分や酸素等の素子 劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能 を有しているものであればよい。その具体例としては、 In, Sn, Pb, Au, Cu, Ag, Al, Ti, N i等の金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、 GeO, NiO, CaO, BaO, Fe₂O₃, Y₂O₃ 、TiO。等の金属酸化物、MgF。、LiF、Al F_3 、 CaF_2 等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリ プロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、 ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロ トリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレ ン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロ エチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少な くとも1種のコモノマーとを含むモノマー混合物を共重 合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有 する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、 吸水率 0. 1%以下の防湿性物質等が挙げられる。保護 層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸 着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、M BE(分子線エピタキシ)法、クラスターイオンビーム 法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法(高周波 励起イオンプレーティング法)、プラズマCVD法、レ ーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コ ーティング法、インクジェット法、印刷法などを適用で きる。

[0158]

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれにより限定されるものではない。実施例1. 洗浄したITO電極付きガラス基板上に、銅フタロシアニンを膜厚15nm、N,N'ービス(1ーナフチル)-N,N'ージフェニルベンジジン(NPD)を膜厚40nm、表1記載化合物を膜厚60nmで、この順に真空蒸着($1.0 \times 10^{-3} \sim 1.3 \times 10^{-3}$ Pa)した。この上にパターニングしたマスク(発光面積が4mm×5mmとなるマスク)を設置し、マグネシウ

ム:銀=10:1を250n m共蒸着した後、銀300n mを蒸着し($1.0 \times 10^{-3} \sim 1.3 \times 10^{-3}$ Pa)、発光素子を作製した。なお、作製した素子は乾燥グローブボックス内で封止した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、ITOを陽極、Mg:Agを陰極として直流定電圧を発光素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長、色度座標(CIE色度座標)を浜松フォトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定し

た。また、作製した素子を85℃、70%RHの条件下に3日間放置後発光させた相対輝度(素子作製直後の輝度を100とした場合の経時後の輝度を相対値で表した値(駆動電圧10V))および発光面のダークスポット(未発光部)の有無を目視評価した。結果を表1に示す。

[0159]

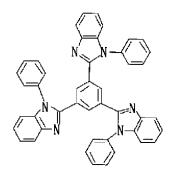
【表1】

表 1

4.5494		50 V 5 M 15	≓ ⇒ keznte	OLD A DOUBLE	E (C.Biffl	47 II 土分4.75	# 57	
試料	化合物	発光波長	最高輝度	CIE色度座標	最低駆動	経時後の	ダークス ボット	備考
No.	16百秒	λ max(nm)	(cd/m²)	(x,Y)	電圧(V)	相対輝度	ポット 発生	NH3.43
101	比較化合物 1	460	410	(0.16, 0.15)	6	77	無	比較例
102	比較化合物 2	445	230	(0.15, 0.15)	7	12	有	"
103	例示化合物 2	465	1620	(0.16, 0.15)	4	82	無	本発明
104	例示化合物18	463	1777	(0.16, 0.16)	4	91	無	"
105	例示化合物19	447	1650	(0.16, 0.17)	4	88	無	"
106	例示化合物21	420	1820	(0.15, 0.13)	4	93	無	"
107	例示化合物24	432	1900	(0.15, 0.14)	4	94	無	"

【0160】 【化80】

比較化合物 1



特開平10-92578号記載化合物

比較化合物 2 (PBD)

【0161】表1の結果より、本発明の化合物を用いると非ドープ型の素子でも高輝度で色純度良好な青色発光が可能であることがわかる。また、高温保管後の輝度低下、ダークスポットの発生も少なく耐久性に優れていることがわかる。

【0162】実施例2.実施例1と同様にITO基板を洗浄後、銅フタロシアニンを膜厚5nm、NPDを膜厚40nm、青色発光材料Aを膜厚20nm、表2記載の化合物を膜厚40nmとなるようにこの順に真空蒸着 $(1.0\times10^{-3}\sim1.3\times10^{-3}\mathrm{Pa})$ した。この上にパターニングしたマスク(発光面積が4mm×5mmとなるマスク)を設置し、マグネシウム:銀=10:1を250nm共蒸着した後、銀300nmを蒸着し($1.0\times10^{-3}\sim1.3\times10^{-3}\mathrm{Pa}$)、発光素子を作製した。なお、作製した素子は乾燥グローブボックス内で封止した。作製した素子について実施例1と同様な評価を行った。結果を表2に示す。

[0163]

【表2】

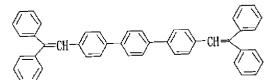
表 2

試料		発光波長	最高輝度	CIE色度座標	最低駆動	経時後の	ダークス	備考
No.	化合物	λmax(nm)	(cd/m²)	(x,Y)	電圧(V)	相対輝度	ポル 発生	岬 与
201	比較化合物 1	460	510	(0.15, 0.15)	6	79	無	比較例
202	比較化合物 2	462	320	(0.15, 0.15)	7	19	有	"
203	例示化合物18	462	3040	(0.15, 0.15)	4	83	無	本発明
204	例示化合物19	462	2780	(0.15, 0.16)	4	92	無	"
205	例示化合物21	461	3820	(0.15, 0.14)	4	94	無	"
206	例示化合物24	462	4040	(0.15, 0.14)	4	98	無	"
207	例示化合物26	461	2650	(0, 15, 0, 15)	4	81	無	"
208	例示化合物81	464	2430	(0, 15, 0, 15)	4	80	無	"

比較化合物1、2は実施例1と同じ。

【0164】 【化81】

青色発光材料A



【0165】表2の結果より、本発明の化合物を用いると非ドープ型の素子で電子輸送材として機能し、高輝度で色純度良好な青色発光が可能であることがわかる。また、高温保管後の輝度低下、ダークスポットの発生も少なく耐久性に優れていることがわかる。

【0166】実施例3. 実施例1と同様にITO基板を 洗浄後、銅フタロシアニンを膜厚5nm、NPDを膜厚 40nm、ペリレンおよび表3記載の化合物をそれぞれ蒸着速度0.004nm/秒、0.4nm/秒で膜厚60nmとなるように共蒸着 $(1.0\times10^{-3}\sim1.3\times10^{-3}Pa)$ した。。この上にパターニングしたマスク(発光面積が4mm×5mmとなるマスク)を設置し、マグネシウム:銀=10:1を250nm共蒸着した後、銀300nmを蒸着し $(1.0\times10^{-3}\sim1.3\times10^{-3}Pa)$ 、発光素子を作製した。なお、作製した素子は乾燥グローブボックス内で封止した。作製した素子について駆動電圧8Vと15Vでの輝度、色度(輝度はトプコン社の輝度計BM-8、色度は浜松フォトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定)を測定した結果を表3に示す。

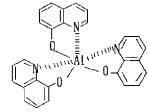
【0167】 【表3】

表3

試料		最高輝度(cd/m²)		CIE色度图	備考	
No.	化合物	8 V駆動時	15V 駆動時	8 V駆動時	15V駆動時	DHI. C
301	比較化合物 3	475	2250	(0.15, 0.15)	(0.17, 0.25)	比較例
302	例示化合物 5	920	2890	(0.15, 0.15)	(0.15, 0.16)	本発明
	例示化合物18	1040	3130	(0, 15, 0.15)	(0.15, 0.16)	"
303		860	2840	(0.15, 0.15)	(0.15, 0.15)	"
304	例示化合物27			(0.15, 0.15)	(0.15, 0.16)	"
305	例示化合物82	740	2600	(0.10, 0.10)	(0, 10, 0, 10,	<u> </u>

【0168】 【化82】

比較化合物 3 (Alq)



【0169】表3の結果から明らかなように、本発明の

化合物を用いた素子では、蛍光性化合物をドープした系でも高輝度発光が可能であることが判る。またA1 qをホストに用いた素子では駆動電圧を高くすると青色純度が低下するのに対し、本発明の化合物をホストに用いた素子では色純度の変化が殆ど見られず、色純度の高い高輝度発光が可能であることが判る。

【0170】実施例4. ポリ(Nービニルカルバゾール)40mg、青色発光材料B10.0mg、緑色発光材料G2.0mg、赤色発光材料R0.5mg、表4記載の化合物12.0mgを1,2-ジクロロエタン3m

1に溶解し、洗浄したITO基板上にスピンコートした。生成した有機薄膜の膜厚は、約110 n m であった。有機薄膜上にパターニングしたマスク(発光面積が $4\,\mathrm{mm} \times 5\,\mathrm{mm}$ となるマスク)を設置し、次いで $\mathrm{Al}:$ $\mathrm{Li}=100:2$ 比で膜厚200 n m となるように共蒸着して発光素子を作製した。この素子を実施例1と同様な方法で評価した。結果を表4に示す。

【0171】 【表4】

表 4

27. 1						
試料	/I₄ 人 film	最低駆動	最高輝度	CIE色度座標	ダークス ボット	備考
No.	化合物	電圧(V)	(cd/m²)	(x,Y)	ポル 発生	VH- '-3
401	比較化合物 2	1 4	425	(0. 32, 0. 35)	有	比較例
402	例示化合物 3	9	3030	(0.34, 0.35)	無	本発明
403	例示化合物 4	9	2760	(0.34, 0.36)	無	"
404	例示化合物 5	8	3270	(0.33, 0.36)	無	"
405	例示化合物18	8	4150	(0.33, 0.36)	無	"
406	例示化合物27	9	3050	(0, 34, 0, 35)	無	"

比較化合物は実施例1と同じ。

[0172]

【化83】

緑色発光材料G

赤色発光材料R

【0173】表4の結果から明らかなように、本発明の化合物を用いた素子では、比較化合物に比べ、通常発光輝度が低い塗布方式においても低電圧駆動、高輝度発光が可能であることが判る。また、比較化合物2(PBD)を用いた素子ではダークスポットの発生が顕著に見られるのに対し、本発明の素子では良好な面状発光を示した。更に、本発明の化合物を用いて青色、緑色および赤色発光材料を組み合わせて用いると良好な白色発光が可能なことが判る。

【0174】実施例5. 実施例1と同様にITO基板を洗浄後、NPDを膜厚50nm、4, 4'ービス(カルバゾールー9ーイル)ビフェニルおよびトリス(2ーフェニルピリジン)イリジウム(III)をそれぞれ蒸着速度0.4nm/秒、0.025nm/秒で膜厚20nmとなるように共蒸着し、次いで例示化合物21を膜厚25nm蒸着し、更にLiFを膜厚1nm蒸着(1.0×10⁻³~1.3×10⁻³Pa)した。この上にパターニングしたマスク(発光面積が4mm×5mmとなるマスク)を設置し、アルミニウムを200nm蒸着(1.0

 CH_a $\times 10^{-3} \sim 1.3 \times 10^{-3} Pa$)して素子を作製した。 作製した素子について評価した結果、緑色で最高輝度 9 8,000 cd/m^2 、外部量子効率 14% の高輝度、高効率発光が得られた。

【0175】実施例6.実施例1と同様にITO基板を洗浄した後、Baytron P(PEDOT-PSS溶液(ポリジオキシエチレンーポリスチレンスルホン酸ドープ体)/バイエル社製)を2000rpm、60秒でスピンコートした後、100℃で1時間真空乾燥し、ホール輸送性膜を作製した(膜厚約100nm)。この上にポリ(9,9ージオクチルフルオレン)20mgをクロロホルム2ミリリットルに溶かした溶液をスピンコート(1000rpm、20秒)した(膜厚約70nm)。この上に例示化合物18を膜厚30nm真空蒸着(1.0×10 $^{-3}$ ~1.3×10 $^{-3}$ Pa)した。次いでこの有機薄膜上にパターニングしたマスク(発光面積が4mm×5mmとなるマスク)を設置し、実施例1と同様にして陰極を蒸着し、素子を作製した(本発明素子)。また、比較素子として上記素子作製工程において

例示化合物 1.8 を除いた素子を作製した。両素子についてEL特性を評価した結果、比較素子では最高輝度 9.3 cd/m²、外部量子効率 0.1%以下であったのに対し、本発明素子では最高輝度 1.6.8 0 cd/m²、外部量子効率 1.3%となり、 π 共役系ポリマーを発光材料として用いた場合にも本発明化合物が電子輸送材料として有効に機能することが明らかとなった。

【0176】実施例7. 実施例1と同様にITO基板を洗浄した後、Baytron P (PEDOT-PSS 溶液 (ポリジオキシエチレンーポリスチレンスルホン酸ドープ体) /バイエル社製) を2000rpm、60秒でスピンコートした後、100℃で2時間真空乾燥し、ホール輸送性膜を作製した(膜厚約100nm)。この上にポリ(Nービニルカルバゾール)40mg、PBD12mgおよびトリス(2ーフェニルピリジン)イリジウム(III)1mgをクロロホルム3ミリリットルに溶解した溶液をスピンコート(1500rpm、20秒)した(膜厚約80nm)。この上に例示化合物21を膜厚20nm真空蒸着(1.0×10 $^{-3}$ ~1.3×10 $^{-3}$ Pa)し、更にLiFを膜厚約1nm蒸着(1.0×10 $^{-3}$ ~1.3×10 $^{-3}$ Pa)した。この上にパター

ニングしたマスク(発光面積が $4 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ となるマスク)を設置し、アルミニウムを200 nm蒸着($1.0 \times 10^{-3} \sim 1.3 \times 10^{-3} \text{ Pa}$)して素子を作製した(本発明素子)。また、比較素子として上記素子作製工程において例示化合物 21 を除いた素子を作製した。作製した素子について評価した結果、比較素子では発光輝度 1000 cd/m^2 の時の外部量子効率が 5.2%であったのに対し、本発明素子では外部量子効率10.2%となり、三重項励起子からの発光と言われているトリス(2-7ェニルピリジン)イリジウム(111)を用いた塗布型素子においても、本発明化合物が電子輸送材料として有効に機能することが明らかとなった。

[0177]

【発明の効果】本発明の化合物により、ドープ型および 非ドープ型素子のいずれにおいても色純度良好な高輝度 青色発光素子の作製が可能となり、また広範囲の波長域 に発光可能な素子が提供できる。また、通常輝度の低い 塗布方式でも良好な発光特性が得られ、製造コスト面等 で有利な素子作製が可能である。更に、耐久性が良好 で、駆動電圧の違いによる色度変化も小さい有機発光素 子が得られる。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. ⁷	識別記	E号 FI		テーマコード(参考)
C 0 7 D 51	9/00 3 1	1 C 0 7 D	519/00 3	1 1
C 0 7 F	7/08	C 0 7 F	7/08	R
	7/30		7/30	F
H05B 3	33/14	H 0 5 B	33/14	В
3	33/22		33/22	В
// C08F 1	.2/26	C 0 8 F	12/26	
22	26/06		226/06	

Fターム(参考) 3K007 AB01 AB12 AB17 AB18 CA01 CB01 CB03

4C072 MM02 MM03 MM10 UU05

4H049 VN01 VN02 VP01 VQ60 VQ84

VR24 VU29 VW01

4J100 AB07P AQ26Q BC43P BC65Q BC73P BD15P CA01 CA04 DA01 JA32